

This Page Is Inserted by IFW Operations  
and is not a part of the Official Record

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning documents *will not* correct images,  
please do not report the images to the  
Image Problem Mailbox.**

## GAS DIFFUSION ELECTRODE HAVING GAS LIFT PUMP PART

Patent Number: JP10110287

Publication date: 1998-04-28

Inventor(s): FURUYA CHOICHI

Applicant(s):: FURUYA CHOICHI; TOAGOSEI CO LTD; MITSUI PETROCHEM IND LTD; KANEKA FUCHI CHEM IND CO LTD

Requested Patent: JP10110287

Application Number: JP19960264598 19961004

Priority Number (s):

IPC Classification: C25B9/00 ; C25B11/00

EC Classification:

Equivalents: JP2857111B2

### Abstract

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To provide a gas diffusion electrode capable of circulating a catholyte to a catholyte section in contact with the surface of the gas diffusion electrode at a high speed and efficiently utilizing a reaction gas.

**SOLUTION:** The gas diffusion electrode 2, one surface of which faces the electrolyte section and another surface of which is in contact with a gas section 3, has a gas lift pump part provided with a circulating passage for an electrolyte, which is adjacent to the gas section 3 and communicated with the top end and the bottom end of the electrolyte section and with the bottom end of the gas section. And in the gas lift pump part, the electrolyte is supplied from the upper part of the electrolyte section, passed through as downstream flow and introduced into the circulating passage of the electrolyte, the reaction gas is supplied to the gas section from the upper part, passed through as the downstream flow and discharged as bubbles to the circulating passage of the electrolyte and the electrolyte is raised in the circulating passage and circulated by the rising action of the discharged gas.

Data supplied from the esp@cenet database - I2

(19)日本国特許庁 (JP)

## (12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平10-110287

(43)公開日 平成10年(1998)4月28日

(51)Int.Cl.<sup>6</sup>C 25 B 9/00  
11/00

識別記号

307

F I

C 25 B 9/00  
11/00

307

審査請求 有 請求項の数1 O.L (全7頁)

(21)出願番号 特願平8-264598

(22)出願日 平成8年(1996)10月4日

(71)出願人 000165952

古屋 長一

山梨県甲府市中村町2番14号

(71)出願人 000003034

東亜合成株式会社

東京都港区西新橋1丁目14番1号

(71)出願人 000003126

三井東圧化学株式会社

東京都千代田区霞が関三丁目2番5号

(71)出願人 000000941

純源化学工業株式会社

大阪府大阪市北区中之島3丁目2番4号

(74)代理人 弁理士 萩野 平 (外3名)

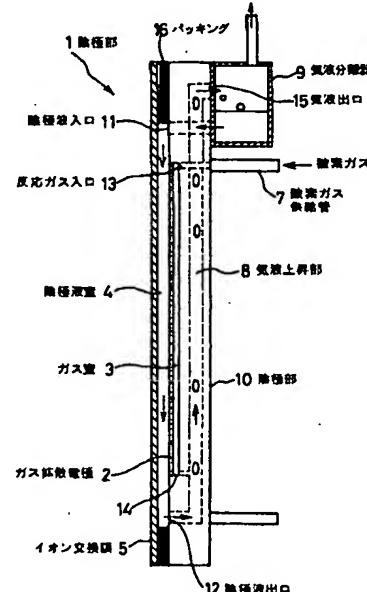
最終頁に続く

(54)【発明の名称】ガスリフトポンプ部を有するガス拡散電極

## (57)【要約】

【課題】ガス拡散電極の面が接する陰極液室内に陰極液が高速で循環できるようにし、かつ反応ガスを有效地に利用できるガス拡散電極を提供すること。

【解決手段】一面が電解液室に面し他面がガス室に接するガス拡散電極において、前記ガス室に隣接して前記電解液室の上端及び下端に連通し、かつ前記ガス室の下端に連通する電解液の循環通路を設け、前記電解液室の上方から電解液を供給して下降流として通して前記電解液の循環通路に導き、かつ前記ガス室に反応ガスを上方から供給して下降流として通し、前記電解液の循環通路中に気泡として放出させ、該放出ガスの上昇作用によって前記液の循環通路中の電解液を上昇せしめ、循環せしめるガスリフトポンプ部を有するガス拡散電極。



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 一面が電解液室に面し他面がガス室に接するガス拡散電極において、前記ガス室に隣接して前記電解液室の上端及び下端に連通し、かつ前記ガス室の下端に連通する電解液の循環通路を設け、前記電解液室の上方から電解液を供給して下降流として通して前記電解液の循環通路に導き、かつ前記ガス室に反応ガスを上方から供給して下降流として通し、前記電解液の循環通路中に気泡として放出させ、該放出ガスの上昇作用によって前記液の循環通路中の電解液を上昇せしめ、循環せしめることを特徴とするガスリフトポンプ部を有するガス拡散電極。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、主として電解槽に用いられるガス拡散電極に関し、特に塩化アルカリ金属電解槽等の電解槽に用いて電解電圧を低減することができる気泡放出型のガス拡散電極に関する。

## 【0002】

【従来の技術】 ガス拡散電極を用いる塩化アルカリ金属電解槽は、例えば、ガス拡散電極を陰極として使用して、塩化ナトリウム水溶液（以下「塩水」という。）をイオン交換膜法で電解し苛性ソーダを製造するのに使用する形式の食塩電解槽として良く知られているものである。ガス拡散電極は、反応ガスとして酸素または酸素を含むガスを使用する場合、「酸素陰極」とも呼ばれている。酸素陰極は、素材が多孔質体からなり、該多孔質陰極の一方の面は陰極液に接しており、他方の面は酸素陰極に付属するガス室に供給される酸素含有ガスに接しているという構成を有している。ガス拡散電極を用いる塩化アルカリ金属電解槽の従来の典型的電解槽の大要を図7を用いて説明する。

【0003】 図7に示すように、ガス拡散電極30を用いる食塩電解槽21は、陽極22を有し塩水を入れた陽極室23と、陰極であるガス拡散電極30を有し陰極液（水又は苛性ソーダ水溶液である。）を入れた陰極液室27とを、一般に陽イオン膜であるイオン交換膜26により区画した構成を有しており、両電極間に通電して電解することにより、陰極液室24に濃厚化した苛性ソーダ水溶液を得るものである。なお、前記の陽極24は、陰極のガス拡散電極30との間隔をなるべく狭くするために通液性の素材で作られ、イオン交換膜26に接して設けられている場合のものである。この電解槽21では、陽極室23の下部の塩水入口24から塩水を導入し、電解により発生した塩素ガスは薄くなった塩水と共に塩素ガス出口25から外にで、また前記の水又は苛性ソーダ水溶液からなる陰極液は陰極室27の下部の陰極液入口28から入って、濃厚化した苛性ソーダ水溶液となり上部の陰極液出口29から外に出る。ガス拡散電極30の裏側に設けたガス室31には上部のガス入口32

10

から酸素含有ガスが導入され、下部のガス出口33から出るように構成されている。

20

【0004】 食塩電解槽には陰極にガス拡散電極を使用しない形式のものもあるが、この場合には陰極において水素が発生するため、水素発生に起因する理論分解電圧と過電圧（「水素過電圧」）が生じ、電解電圧が高くなる。これに対し、陰極としてガス拡散電極を使用する形式の場合には、酸素還元反応を起こさせるので、陰極で水素ガスが発生しないため、電解電圧が著しく低減されるという利点を有する。イオン交換膜を用いる食塩電解などでは、陽極室においても、陰極液室においても、電解液はイオン交換膜と電極の間を流れていることが必要とされている。ただし、図4の場合には、陽極がイオン交換膜に接して設けられているため、陽極の裏側を流れている。従来のガス拡散電極を用いる食塩電解槽では、陽極室においては勿論、陰極液室においても陰極液は、系外に送液ポンプを設置して、その送液ポンプによって強制的に流されていたが、電解電圧を低下させる関係で陰極室などはなるべく薄くする必要があるため、この方法では陰極液室内における陰極液の流れを均一化することも、高速化することも困難であった。また従来、前掲の図4に示すように、反応ガスは、ガス拡散電極に付属するガス室に、系外のガス源からガス入口32より供給し、ガス出口33から直接系外に排出している。

30

【0005】 ガス拡散電極は、反応層のみ、あるいは反応層とガス拡散層とを張り合わせた構造をしており、反応層もガス拡散層も多孔性の導体を主体とした薄層で構成され、全体として通気性を有している。また、ガス拡散電極の反応層にはその微細孔に白金などの貴金属系からなる触媒が担持されている。ガス拡散電極の反応層は、陰極液と接触する陰極液室側は親水性で電解液が浸透し得るが、ガスと接触するガス室側は撥水性となっており、ガス拡散層を有する場合は陰極液はガス室に漏洩することはない。場合によって陰極液をガス室に漏洩してもかまわない。このようにガス拡散電極は、一方は陰極液に接触し、他方はガス室と接触するために、反応層とガス拡散層とを張り合わせた構造とすることが好ましい。かくして、陰極液に接する反応層側から水はガス拡散層側へ通過する、一方酸素はガス拡散層側から供給され、水と酸素が出会う界面でナトリウムイオンと触媒の存在下で、水は酸化され水酸基となり、苛性ソーダが生成する。

40

## 【0006】

【発明が解決しようとする課題】 前記したように従来のガス拡散電極を用いる典型的食塩電解槽では、ガス室に供給した反応ガスは、ガス拡散電極に拡散する一部の反応ガスを除いては、ガス出口から直接排出されていたので、反応ガスの利用効率は悪いものであった。また、陰極液は外部より送液ポンプを用いて陰極液室に供給し、ガス拡散電極の反応層の面に流すようにしている。しか

しながら、送液ポンプによって強制的に流す方法では、前記したように陰極液室がかなり薄いため、陰極液室内における陰極液の流れを均一化することも高速化することも困難であった。本発明の課題は、従来の方法の前記欠点を改良し、ガス拡散電極の電解液側の陰極液室側に陰極液を均一にかつ高速で流れるようにし、それにより循環できるようにし、かつ反応ガスを有效地に利用できる改良されたガス拡散電極を提供することにある。

## 【0007】

【課題を解決するための手段】本発明者は、前記改良されたガス拡散電極を用いた電解槽を開発するべく銳意研究を重ねた結果、ガス室に供給した反応ガスを有效地に利用することにより陰極液室側に陰極液が良く流れるようになるのではないかという点に着目して、本発明を完成するに至った。すなわち、本発明は、次の手段によって前記の課題を達成することができた。

(1) 一面が電解液室に面し他面がガス室に接するガス拡散電極において、前記ガス室に隣接して前記電解液室の上端及び下端に連通し、かつ前記ガス室の下端に連通する電解液の循環通路を設け、前記電解液室の上方から電解液を供給して下降流として通して前記電解液の循環通路に導き、かつ前記ガス室に反応ガスを上方から供給して下降流として通し、前記電解液の循環通路中に気泡として放出させ、ガスリフトポンプを形成することで、該放出ガスの上昇作用によって前記液の循環通路中の電解液を上昇せしめ、循環せしめることを特徴とするガスリフトポンプ部を有するガス拡散電極。

## 【0008】

【発明の実施の形態】本発明の改良されたガス拡散電極を図面により詳しく説明する。そのガス拡散電極を有する陰極部の断面図を図1、正面図を図2に示し、電極の要部の拡大断面図を図3に示す。ここでは、ガス拡散電極、ガス室などをまとめたものを陰極部として示している。また、ガス拡散電極4は、反応層とガス拡散層とを張り合わせた構造のものであるとして説明する。図1では、陰極部1にはバッキング16を介してイオン交換膜5が取り付けられており、また以下に説明する気泡を含んだ陰極液から反応ガスを分離し、反応ガスが分離された陰極液を陰極液室4に供給する役割の気液分離器9を陰極部1の上部に取り付けた状態を示している。前記気液分離器9から供給された陰極液は、イオン交換膜5とガス拡散電極2の間である陰極液室4を流下する。流下する途中、陰極液の一部は、ガス拡散電極2の反応層中に拡散する。

【0009】一方反応ガスは、上部に設けた酸素供給管7から陰極部1に注入され、反応ガス入口13からガス室3に入り、ガス拡散電極2のガス拡散層と陰極枠10との間のガス室3を均一に流下する。流下する途中、酸素ガスの一部は、ガス拡散電極2のガス拡散層中に拡散

リウムイオンを含む。)とガス拡散層に拡散した酸素(反応ガス)は、触媒の存在下に反応し苛性ソーダ水溶液となり、該苛性ソーダ水溶液は陰極液室4で生成する。陰極液室4中を流下した陰極液は、陰極室下端の陰極液出口12から出て、ガス拡散電極2の陰極枠10内に設けられている気液上昇部8(陰極液循環路である)に入る。一方ガス室3を流下した酸素ガスは、下部の反応ガス出口14から気液上昇部8に入り、その際陰極液があるためその中に気泡となって、気液上昇部8中の陰極液の中に放出されることにより、ガスリフトポンプが形成される。

【0010】前記気液上昇部8中の電解液は、放出された気泡を含むため、気泡を含まない電解液に比べて軽いために気液上昇部8中を上昇する。前記陰極液室4、気液上昇部8およびそれらを連絡する連絡管の中は陰極液によって充満されているので、気液上昇部に生じた陰極液を上昇させる上昇力は、前記陰極液室4、気液上昇部8および連絡管の中の陰極液を移動させる原動力(いわゆるガスリフト作用)となる。前記陰極液を移動させる原動力を生んだ気泡は、さらに上昇して気液上昇部8の最上部に設けられている気液出口15から気液分離器9に入り気液分離される。気体(反応ガス)は上部から系外に排出され、陰極液は気液分離器9に貯蔵されつつ再び陰極液室4に供給される。これにより陰極液の循環が行われる。

【0011】図3は、陰極部1の下部の拡大断面説明図であり、本発明の陰極部1の反応ガス出口14および陰極液出口12付近を拡大して、イオン交換膜5、陰極液室4、気液上昇部8、それらの連絡管、ガス拡散電極2、ガス室の配置をわかり易く示し、それによって陰極液中に反応ガスが気泡となって上昇はじめる状態をわかり易くした図である。また、図2は、本発明の陰極部1のガス拡散電極2とガス室3との境界面からガス室側を見たときの正面図である。ガス室3の裏側に設けた気液上昇部8及び気液出口15は見えないため点線で示す。気液上昇部8の通路の幅は、図2に示すように陰極液室と同じ幅を持つことは必要としないし、またある程度狭い方が反応ガスが集中して上昇速度を大きくすることができ、陰極液の循環上に好ましい。ここで、気液上昇部8の通路の幅あるいは厚みは、陰極液室4内の陰極液の移動速度に及ぼす影響を考慮しつつ変動することができる。また、図2は、本発明の陰極部1のイオン交換膜5と陰極液室4の境界面からガス拡散電極側を見たときの正面図である。

【0012】ガス放出口は電極の側面でもよく、背面でもよく、必ずしも電極と一体である必要はない。側面とする場合には、図4に示すような構造とすることができます。図4は、ガス室の側面に気泡放出口を設けた本発明のガス拡散電極の断面説明図を示すものであって、(a)は電極の正面図であり、(b)は電極の側面図を

示す。(b)に見るように、ガス室3の両側面に気泡放出口14を設け、かつそれに面して(a)にみるように陰極液室の空間部を設け、気泡放出口14から気泡17が放出されると、気泡17の上昇に伴い陰極液も一緒に気泡上昇部8を上昇して、上方で気体を分離した後、陰極液はガス拡散電極2とイオン交換膜5との間の陰極液室を通って電解される。なお、ガス室3は図5に示すように幾つかの小さい室に区画することにより分割して、それぞれに反応ガス入口からガスを供給し、それぞれの小室に気泡放出口14を設けて、それらから気泡を放出するようにするときには、ガス拡散電極と電解液との差圧を小さくし、ガス拡散電極への酸素の供給が均一に行われる所以好ましい。

【0013】また、本発明のガス拡散電極は、モノポーラ型の電極として構成することもできる。この形式の電極とする場合には、図6に示すように、後ろにガス室3を有する板状のガス拡散電極2を背中合わせにその間を開けて並立させ、各ガス拡散電極2の前面にはイオン交換膜5を設けて陰極液室を形成し、イオン交換膜5の外側には陽極18を設けて陽極室とした構造の電解槽が構成される。

陽極室の幅	100 mm
陽極の種類	D S A (登録商標)
イオン交換膜の種類	ナフィオン (Nafion)
同 大きさ	100×250 mm
電解温度	80°C
苛性ソーダ濃度	32%
塩水の濃度	300 g/リットル
電解電圧	2.26 V
電流	39 A/dm <sup>2</sup>
ガス拡散電極の種類	0.56 mg/cm <sup>2</sup> 白金担持ガス拡散電極

【0015】この電解槽により電解したときの電流効率は95%であった。この場合、陰極液の循環に液循環ポンプを使用しなかった。また、比較実験として、気液上昇部のガス出口14を塞いで、気液上昇部にガスの供給が行われない条件で電解した場合には、電流効率は92%であって、本発明よりも低かった。本発明の場合においては、液循環ポンプを使用しないため、陰極液側の液圧が上昇せず、ガス拡散電極の陰極液側とガス室側との間の差圧が殆どないようにすることができた。

【0016】

【発明の効果】本発明によれば、陰極液室中の陰極液の循環が良くなつたので、電解における電流効率が向上し、例えば実施例によれば92%から95%に上昇した。また、液循環ポンプを使用する必要がなくなり、装置が簡単となり、エネルギー効率上有利である。さらに、液循環ポンプを使用しないので、陰極液側の液圧が上昇せず、ガス拡散電極の陰極液側とガス室側との間の差圧が殆どないようにすることができ、ガス拡散電極の寿命が2年以上と長くすることができる。陰極室の陰極液の移動は、気液上昇部および連絡管の中の陰極液の

\*成される。各ガス室3の裏側の間は気液上昇部8とし、ガス室3の下端に気泡放出口14を設けそこからガスを気泡として放出させると、気泡が陰極液とともに気液上昇部8内を上昇し、陰極液の循環が非常に良く行われる。このガス拡散電極2は板状でなく、円筒状の形状とすることもできる。なお、前記本発明の実施態様の説明では、陰極液に移動は専ら気液上昇部8を上昇する気泡の上昇効果によるとして説明したが、必要によっては陰極液を系外に設置した送液ポンプによって供給することを併用しても構わない。

#### 【0014】

【実施例】以下、実施例により本発明を具体的に説明する。ただし、本発明はこの実施例のみに限定されるものではない。

#### 実施例1

図1～3に示す構造の食塩電解槽を作成し、電解を行った。ガス拡散電極の面積は200 cm<sup>2</sup>で、陰極液室の幅は100 mmであり、ガス室の裏側に気液上昇部の通路の幅は10 mmで、厚さ6 mmであった。

移動と運動しているので、循環ポンプで液を供給する場合のように脈動などがない、均一に陰極液室中を移動させることができるので、塩化アルカリ金属液の電解を均一化することができる。また、水または陰極新液の供給と気液上昇部の通路の幅あるいは/および厚みの調節によって陰極液室中の陰極液の移動を自由に行うことができ、ポンプで液を供給する場合より高速化することも脈動などが不均一流動を生じさせずに行うことができる。

#### 【図面の簡単な説明】

40 【図1】本発明のガスリフトポンプ部を有するガス拡散電極の一例の陰極部を示す断面説明図である。

【図2】本発明のガスリフトポンプ部を有するガス拡散電極の一例の陰極部を示す拡大した部分断面説明図である。

【図3】本発明のガスリフトポンプ部を有するガス拡散電極の一例の陰極部を示す正面説明図である。

【図4】ガス室の側面に気泡放出口を設けた本発明のガス拡散電極の断面説明図を示し、(a)が正面説明図であり、(b)が側面説明図である。

50 【図5】ガス室を小室に分割した構造を有する本発明の

ガス拡散電極のガス室の断面説明図を示す。

【図6】本発明のガス拡散電極をモノポーラ型の構造とした例の断面説明図を示す。

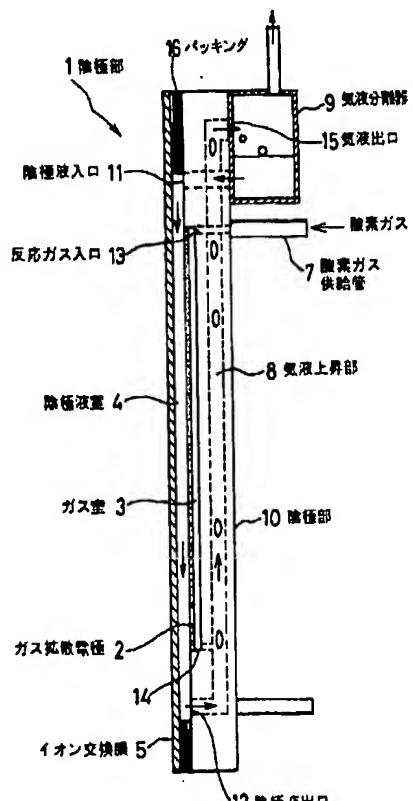
【図7】ガス拡散電極を有する従来のイオン交換膜法電解槽の典型例を示す断面説明図である。

【符号の説明】

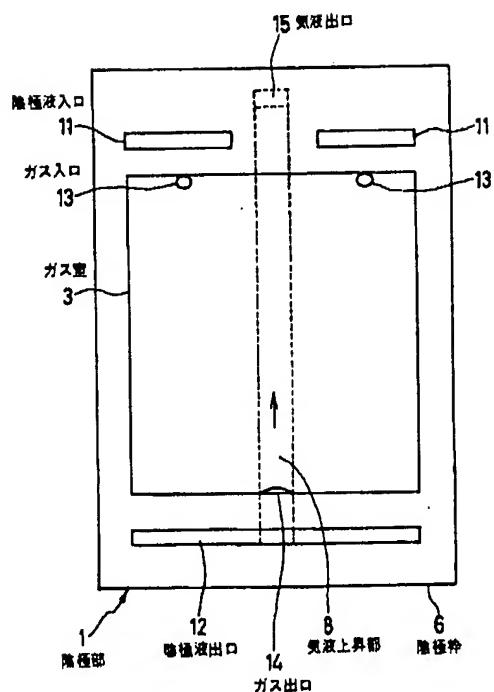
- 1 陰極部
- 2 ガス拡散電極
- 3 ガス室
- 4 陰極液室
- 5 イオン交換膜
- 7 酸素ガス供給管
- 8 気液上昇部
- 9 気液分離器
- 10 陰極枠
- 11 陰極液入口
- 12 陰極液出口
- 13 ガス入口
- 14 ガス出口

- 15 気液出口
- 16 パッキング
- 17 気泡
- 18 陽極
- 21 電解槽
- 22 陽極
- 23 陽極室
- 24 塩水入口
- 25 塩素ガス出口
- 10 26 イオン交換膜
- 27 陰極液室
- 28 陰極液出口
- 29 陰極液入口
- 30 ガス拡散電極
- 31 ガス室
- 32 ガス(酸素)入口
- 33 応ガス(酸素)出口
- 34 陰極枠

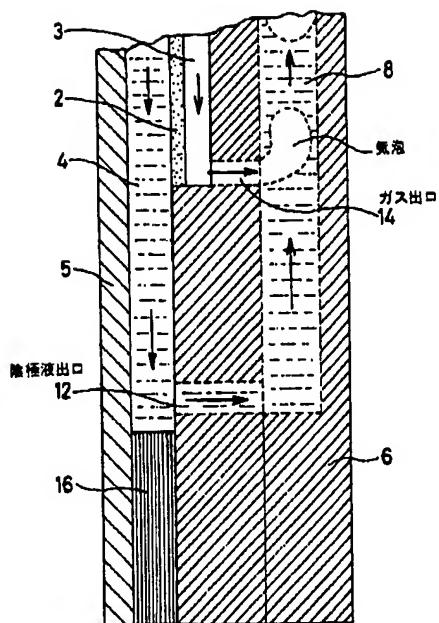
【図1】



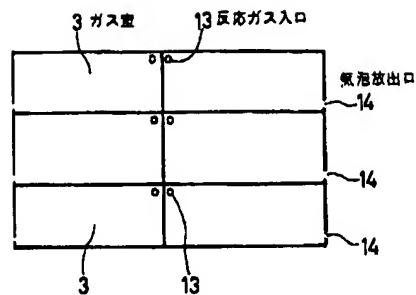
【図2】



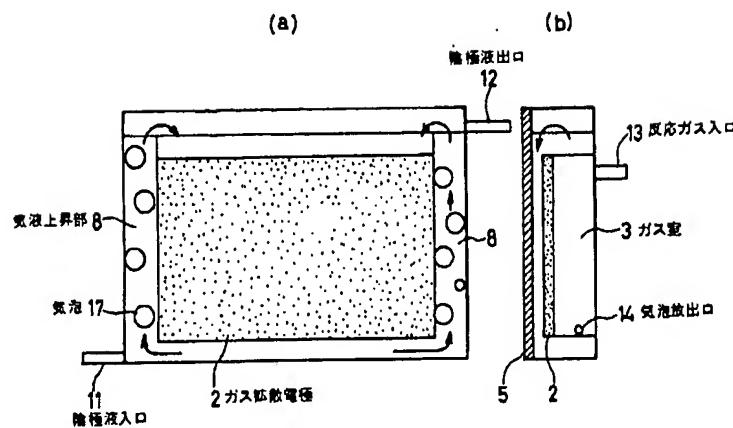
【図3】



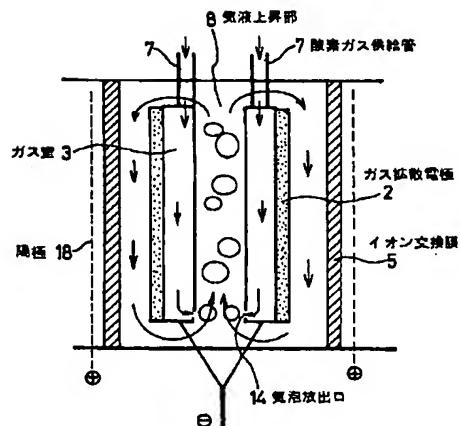
【図5】



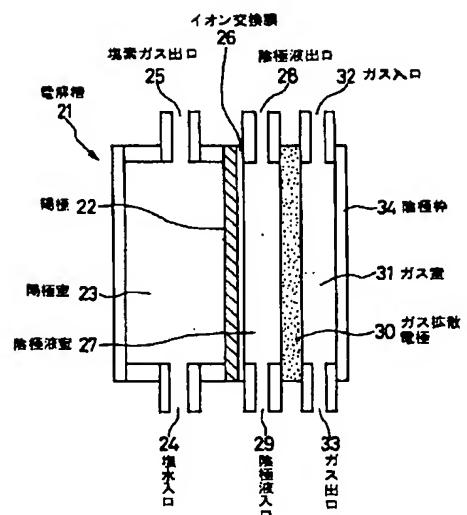
【図4】



【図6】



【図7】



フロントページの続き

(72)発明者 古屋 長一  
山梨県甲府市中村町2-14